

## Chiral Charge-Density Waves

(カイラル電荷密度波)

## 学位論文内容の要旨

自然界には様々な対称性が存在し、物理法則を支配している。系の秩序化が進むことで、対称性は自発的に破れる。特に、基底状態の記述には様々な秩序パラメータが用いられる。系の構成要素の異方性や、秩序化のメカニズムによって、秩序パラメータにも自由度が生じる。逆に言えば、秩序パラメータの新たな自由度の有無を調べることは、多様な基底状態に伴う新規物理現象の発見につながるため非常に重要である。素粒子物理との対応関係を探る上でも意義がある。

本研究では、二次元 CDW として知られている  $\text{MX}_2$  群の中から、特にネスティングベクトルに層間方向成分を元々含む  $1\text{T-TiSe}_2$  を選んで、その CDW の構造について走査トンネル顕微鏡と二色ポンププローブ測定法を用いて、CDW の空間分布と空間対称性の变化を調べた。そこで新たなオーダーの自由度を見出した。さらに、系のオーダーパラメータを再考するため、余剰 Ti 原子を層間インターカレーションによって含む試料を作成し、その荷電不純物の周りに誘起されるフリーデル振動を STM で観測した。

第一章では、序論として本研究の背景と目的を述べた。さらに、今までに報告されている様々な系におけるカイラリティの発現に関して記述した。電荷密度波の基本的メカニズムや、典型的二次元 CDW の対称性について論じた。

第二章では、本研究に用いた  $1\text{T-TiSe}_2$  の結晶合成、特性評価について述べる。本実験で用いた走査トンネル顕微鏡の基本原則と、清浄試料表面を得るために極めて重要な低温真空劈開法について述べた。系の層間方向の情報も含んだ領域の対称性を調べるために行った二色ポンププローブ法の概要と光学系および測定条件について述べた。

第三章では、カイラル電荷密度波の発見について述べた。 $1\text{T-TiSe}_2$  において走査トンネル顕微鏡測定を行った結果、低対称の電荷密度分布構造を発見した。格子方向に沿って調べたトンネル電流のラインプロファイルから  $1:0.7:0.5$  ほどの電荷密度波の強度差となる。

STM イメージのフーリエ変換像から、試料全体にわたって電荷密度の振幅差が順序付けできる事がわかった。お互いに反対周りに順序付け可能な二種類の相を発見した。一般に、三角格子系の CDW のネスティングベクトルが 3 本ある場合、トリプル  $q$  の CDW と呼ばれる。典型的なトリプル  $q$  の CDW から予想される三回対称性はなかった。表面情報である STM 測定データに対し、 $c$  軸方向にも侵入できる光パルスプローブを用いて偏光

依存性を調べた結果、二回対称の光学応答を発見した。これらの結果を二次元 CDW の配置モデルで説明することができないため、c 軸成分に着目した 3 次元モデルを提案した。3 成分の電荷密度波を、層間方向に均等に配置する位相差を導入した。等しい強度の 3 成分 CDW を分離配置することにより、各原子面内で二回対称が実現される。探針とそれぞれの CDW 面との距離差によって、STM の測定では三成分の振幅比として現れることで説明できる。3 つの CDW の配置の順番の異なる相が互いに鏡映反転の関係であることから、カイラル CDW である。実験結果を矛盾なく説明できる。さらに、カイラル CDW のオーダーパラメタを一般化した。 $H = q_1 \cdot (q_2 \times q_3)$  と定義した CDW のヘリシティはトリプル  $q$  のネスティングベクトルが一つの面内に存在できないことを条件に正負の二値をとる。一方典型的な二次元 CDW では  $H = q_1 \cdot (q_2 \times q_3)$  は 0 になるのでカイラリティがない。以上より、フェルミ面の特殊性からあらわになる CDW カイラリティを明らかにした。

第四章では、カイラル電荷密度波におけるフリーデル振動の発見について述べた。層状化合物である  $\text{MX}_2$  群は、c 軸方向にファンデルワールス力で積層しており、層間には様々な不純物をインターカレートさせることができる。カイラル CDW のオーダーパラメタの対称性を調べることを目的として、Ti を自己インターカレーションさせて作成した試料の STM 測定を行った。その結果、Se 母格子と CDW の電荷分布をバックグラウンドに三角形の電荷局在構造を発見した。原子数個分の減衰長を持つため、フリーデル振動であると考えられる。この三角形について強度分布を調べた結果、元々の CDW のカイラリティとは逆向きのカイラリティを持つことが分かった。一方で、ホール局在も強度分布を持つことが分かった。これらの結果は電荷密度波のカイラリティの存在をより強く示す結果である。この結果を説明するために、インターカレーションの原子の作る鏡映面に着目した。カイラリティの反転が鏡映面で起こった結果、Se 原子面で逆巻きのフリーデル振動が起きる。カイラル CDW とフリーデル振動を右巻き電子左巻き電子の二成分系で表すことで、実験結果を矛盾なく説明することができる。ホールと電子のフリーデル振動の関係は互いに逆巻きであることからカイラル CDW は電荷パリティ対称性を保存する。また、フリーデル振動は強磁場に対して振幅が増強されることから、新たな磁場効果の研究の可能性があることもここで述べておく。

第五章では、本論文の研究成果を総括した。

以上、本研究は 1T-TiSe<sub>2</sub> 単結晶を用いて、電荷密度波の新たなオーダーパラメタの自由度を調べることを目的として、軸性 CDW が存在することを明らかにした。さらに、電荷密度波のカイラリティは、不純物に対しても相互作用をすることを明らかにした。

# 学位論文審査の要旨

|    |     |     |                |
|----|-----|-----|----------------|
| 主査 | 教授  | 丹 田 | 聡              |
| 副査 | 教授  | 矢久保 | 考 介            |
| 副査 | 教授  | 折 原 | 宏              |
| 副査 | 教授  | 小 田 | 研(理学研究院 物理学部門) |
| 副査 | 准教授 | 市 村 | 晃 一            |

## 学位論文題名

### Chiral Charge-Density Waves

(カイラル電荷密度波)

自然界には様々な対称性が存在し、物理法則を支配している。系の秩序化が進むことで、対称性は自発的に破れる。特に、基底状態の記述には様々な秩序パラメータが用いられる。系の構成要素の異方性や、秩序化のメカニズムによって、秩序パラメータにも自由度が生じる。逆に言えば、秩序パラメータの新たな自由度の有無を調べることは、多様な基底状態に伴う新規物理現象の発見につながるため非常に重要である。素粒子物理との対応関係を探る上でも意義がある。

本研究では、二次元 CDW として知られている  $\text{MX}_2$  群の中から、特にネスティングベクトルに層間方向成分を元々含む  $1\text{T-TiSe}_2$  を選んで、その CDW の構造について走査トンネル顕微鏡と二色ポンププローブ測定法を用いて、CDW の空間分布と空間対称性の変化を調べた。そこで新たなオーダーの自由度を見出した。さらに、系のオーダーパラメータを再考するため、余剰 Ti 原子を層間インターカレーションによって含む試料を作成し、その荷電不純物の周りに誘起されるフリーデル振動を STM で観測した。

第一章では、序論として本研究の背景と目的を述べた。さらに、今までに報告されている様々な系におけるカイラリティの発現に関して記述した。電荷密度波の基本的メカニズムや、典型的二次元 CDW の対称性について論じた。

第二章では、本研究に用いた  $1\text{T-TiSe}_2$  の結晶合成、特性評価について述べる。本実験で用いた走査トンネル顕微鏡の基本原理と、清浄試料表面を得るために極めて重要な低温真空劈開法について述べた。系の層間方向の情報も含んだ領域の対称性を調べるために行った二色ポンププローブ法の概要と光学系および測定条件について述べた。

第三章では、カイラル電荷密度波の発見について述べた。 $1\text{T-TiSe}_2$  において走査トンネル顕微鏡測定を行った結果、低対称の電荷密度分布構造を発見した。格子方向に沿って調べたトンネル電流のラインプロファイルから  $1:0.7:0.5$  ほどの電荷密度波の強度差となる。

STM イメージのフーリエ変換像から、試料全体にわたって電荷密度の振幅差が順序付けできる事がわかった。お互いに反対周りに順序付け可能な二種類の相を発見した。一般に、三角格子系の CDW のネスティングベクトルが 3 本ある場合、トリプル  $q$  の CDW と呼ばれる。典型的なトリプル  $q$  の CDW から予想される三回対称性はなかった。表面情報である STM 測定データに対し、 $c$  軸方向にも侵入できる光パルスプローブを用いて偏光依存性を調べた結果、二回対称の光学応答を

発見した。これらの結果を二次元 CDW の配置モデルで説明することができないため、c 軸成分に着目した 3 次元モデルを提案した。3 成分の電荷密度波を、層間方向に均等に配置する位相差を導入した。等しい強度の 3 成分 CDW を分離配置することにより、各原子面内で二回対称が実現される。探針とそれぞれの CDW 面との距離差によって、STM の測定では三成分の振幅比として現れることで説明できる。3 つの CDW の配置の順番の異なる相が互いに鏡映反転の関係であることから、カイラル CDW である。実験結果を矛盾なく説明できる。さらに、カイラル CDW のオーダーパラメタを一般化した。 $H = q_1 \cdot (q_2 \times q_3)$  と定義した CDW のヘリシティはトリプル  $q$  のネスティングベクトルが一つの面内に存在できないことを条件に正負の二値をとる。一方典型的な二次元 CDW では  $H = q_1 \cdot (q_2 \times q_3)$  は 0 になるのでカイラリティがない。以上より、フェルミ面の特殊性からあらわになる CDW カイラリティを明らかにした。

第四章では、カイラル電荷密度波におけるフリーデル振動の発見について述べた。層状化合物である  $MX_2$  群は、c 軸方向にファンデルワールス力で積層しており、層間には様々な不純物をインターカレートさせることができる。カイラル CDW のオーダーパラメタの対称性を調べることを目的として、Ti を自己インターカレーションさせて作成した試料の STM 測定を行った。その結果、Se 母格子と CDW の電荷分布をバックグラウンドに三角形の電荷局在構造を発見した。原子数個分の減衰長を持つため、フリーデル振動であると考えられる。この三角形について強度分布を調べた結果、元々の CDW のカイラリティとは逆向きのカイラリティを持つことが分かった。一方で、ホール局在も強度分布を持つことが分かった。これらの結果は電荷密度波のカイラリティの存在をより強く示す結果である。この結果を説明するために、インターカレーションの原子の作る鏡映面に着目した。カイラリティの反転が鏡映面で起こった結果、Se 原子面で逆巻きのフリーデル振動が起きる。カイラル CDW とフリーデル振動を右巻き電子左巻き電子の二成分系で表すことで、実験結果を矛盾なく説明することができる。ホールと電子のフリーデル振動の関係は互いに逆巻きであることからカイラル CDW は電荷パリティ対称性を保存する。また、フリーデル振動は強磁場に対して振幅が増強されることから、新たな磁場効果の研究の可能性があることもここで述べておく。

第五章では、本論文の研究成果を総括した。

以上、本研究は 1T-TiSe<sub>2</sub> 単結晶を用いて、電荷密度波の新たなオーダーパラメタの自由度を調べることを目的として、軸性 CDW が存在することを明らかにした。さらに、電荷密度波のカイラリティは、不純物に対しても相互作用をすることを明らかにした。

これを要するに、著者は、固体電子結晶において初めてカイラル渦やその反渦を発見し、その存在メカニズムを明らかにした。このことは固体物理だけでなく物理学全般に対し重要な知見を与えたことになる。よって著者は北海道大学博士 (工学) の学位を授与される資格あるものと認める。